ţ

# Impact-resistant polystyrene-type resin compsn for films and sheets - obtd by compounding gummy elastomer with mixt of styrene type polymer and polyphenylene ether.

Patent Number JP 07053815 A 28 February, 1995

## Abstract

JP 07053815 A UPAB: 8 May, 1995

Impact-resistant polystyrene-type resin compsn. obtd. by compounding 1-100 pts. wt of (A) gummy elastomer with 100 pts. weight of a mixture consisting of 95-99.9 weight % of (B) styrene-type polymer having syndiotactic structure and 0.1-5.0 wt % of (C) polyphenylene ether.

(A) has styrene chain. (C) has intrinsic viscosity of at least 0.20dl/g in CHCl3 at 25 deg C.

USE/ADVANTAGE - The resin compsn. is used to produce sheets, films, containers and fibrous mouldings. The resin compsn. has high thermal resistance modulus of elasticity mouldability impact resistance and extensibility.

In an example, a compsn. obtd from (B) (780g), (C') poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylene ether (20g) having intrinsic viscosity of 0.45dl/g, (A') hydrogenated styrene/butadiene/styrene block copolymer (200g) and antioxidant (2g) had (1) Izod impact strength (notched) of 13.7kJ/m2 and (2) elongation of 19.8%. In a comparative example where the compsn. was obtd. from (B) (800g) and (A') (200g), it had (1) 6.0kJ/m2 and (2) 10.0%. Dwg.0/0

## Assignee(s)

(IDEK) IDEMITSU KOSAN CO LTD

# Application Information

JP 1993-203084 17 August, 1993

## **Priority Information**

JP 1993-203084 17 August, 1993

## **Patent Information**

Number	Kind	Date	Application	Date
JP 07053815	A	28 February, 1995	JP 1993-203084	17 August, 1993
JP 3264468	B2	11 March, 2002	JP 1993-203084	17 August, 1993

1053815A

JP1995053815A 1995-2-28

# Bibliographic Fi lds

**Document Identity** 

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開平7-53815

(43)【公開日】

平成7年(1995)2月28日

**Public Availability** 

(43)【公開日】

平成7年(1995)2月28日

**Technical** 

(54)【発明の名称】

耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物

(51)【国際特許分類第6版】

C08L 25/00 LED

LDK

9/00 LBH

//(C08L 25/00

71:12)

【請求項の数】

3

【出願形態】

O L

7

【全頁数】

【審査請求】

**Filing** 

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number]

Patent Publication No. 07-53815

(43) [Publication Date]

1995 /02/28

(43) [Publication Date]

1995 /02/28

(54) [Title of Invention]

IMPACT-RESISTANT POLYSTYRENE RESIN COMPOSITION

COMPOSITION

(51) [International Patent Classification, 6th Edition]

C08L 25/00 LED

LDK

9/00 LBH

C08L 25/00 /

71: 12)

[Number of Claims]

[Form of Application]

OL

3

[Number of Pages in Document]

7

[Request for Examination]

未請求
Unrequested

(21) 【出願番号】 (21) [Application Number]

特願平 5 - 2 0 3 0 8 4 Patent Application No. 05-203084

(22)【出願日】 (22) [Application Date]

平成5年(1993)8月17日 1993/08/17

**Parties** 

**Applicants** 

(71)【出願人】 (71) [Applicant]

【識別番号】 [Identification Number]

0 0 0 1 8 3 6 4 6 000183646

【氏名又は名称】 [Name]

出光興産株式会社 IDEMITSU KOSAN CO. LTD.

【住所又は居所】 [Address]

東京都千代田区丸の内 3 丁目 1 番 1 号 Tokyo Prefecture, Chiyoda-ku, Marunouchi 3-1-1

**Inventors** 

(72)【発明者】 (72) [Inventor]

【氏名】 [Name]

岡田 明彦 Okada Akihiko

【住所又は居所】 [Address]

千葉県市原市今津朝山 2 1 6 Chiba Prefecture, Ichihara City, Imatsu Asayama 216

(72)【発明者】 (72) [Inventor]

【氏名】 [Name]

佐藤 信行 Sato Nobuyuki

【住所又は居所】 [Address]

千葉県袖ケ浦市上泉 1 2 0 5 - 8 1 Chiba Prefecture, Sodegaura City, Kamiizumi 1205 - 81

Agents

(74)【代理人】 (74) [Attorney(s)]

【弁理士】 [Patent Attorney]

【氏名又は名称】 [Name]

大谷 保 Ohtani Tamotsu

## **Abstract**

# (57)【要約】

## 【目的】

耐熱性,弾性率及び成形性に優れ、かつ耐衝撃性および伸び性に優れたシンジオタクチックポリスチレン系樹脂組成物の開発。

## 【構成】

(A)シンジオタクチック構造を有するスチレン系重合体 95.0~99.9 軍量%と(B)ポリフェニレンエーテル 0.1~5.0 重量%との混合物 100 重量部に対し、(C)ゴム状弾性体 1~100 重量部を配合してなる耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物である。

## **Claims**

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

(A)シンジオタクチック構造を有するスチレン系重合体 95.0~99.9 重量%と(B)ポリフェニレンエーテル 0.1~5.0 重量%との混合物 100 重量部に対し、(C)ゴム状弾性体 1~100 重量部を配合してなる耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物。

# 【請求項2】

(B)成分のポリフェニレンエーテルの固有粘度(クロロホルム中、25 deg C)が 0.20dl/g 以上である請求項 1 記載の耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物。

## 【請求項3】

(C)成分のゴム状弾性体がスチレン鎖を有するものである請求項 1 又は 2 記載の耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物。

# **Specification**

【発明の詳細な説明】

## [0001]

# 【産業上の利用分野】

本発明は耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物に関し、詳しくは、成形性,耐熱性,弾性率に優れ、かつ耐衝撃性及び伸び性に優れたシンジオタクチックポリスチレン系樹脂組成物に関する。

## (57) [Abstract]

# [Objective]

Development of syndiotactic polystyrene resin composition which is superior in heat resistance, elasticity modulus, moldability, impact resistance and elongation property.

## [Constitution]

Impact resistant polystyrene resin composition is blended with (C) 1 to 100 parts by weight rubber elastomer with respect to 100 parts by weight of mixture of (A) 95.0~99.9% by weight syndiotactic styrene polymer, (B) 0.1 to 5.0% by weight polyphenylene ether.

## [Claim(s)]

## [Claim 1]

Impact resistant polystyrene resin composition is blended with (C) 1 to 100 parts by weight rubber elastomer with respect to 100 parts by weight of mixture of (A) 95.0~99.9% by weight syndiotactic styrene polymer, (B) 0.1 to 5.0% by weight polyphenylene ether.

## [Claim 2]

Impact-resistant polystyrene resin composition mentioned in claim 1, wherein the intrinsic viscosity (in chloroform, 25°C) of component (B) polyphenylene ether is at least 0.20 dl/g.

# [Claim 3]

Impact -resistant polystyrene resin composition mentioned in claim 1 or 2, wherein component (C) rubber elastomer is the compound having styrene chain.

## [Description of the Invention]

## [0001]

## [Industrial Field of Application]

The invention relates to impact-resistant polystyrene resin composition, specifically, it relates to syndiotactic polystyrene resin composition which is superior in heat resistance, elasticity modulus, moldability, impact resistance and elongation property.

# [0002]

【従来の技術及び発明が解決しようとする課 題】

従来、シンジオタクチック構造を有するスチレン系重合体(以下、SPSと略す場合がある。) は優れた耐熱性,耐薬品性を示すが、耐衝撃性が低いため材料として用いる適用範囲が限られていた。

そのため、SPS にゴム状弾性体,他の熱可塑性 樹脂をブレンドすることにより SPS の耐衝撃 性の改良が行われてきた(特開昭 62-257950 号 公報,特開平 1-146944 号公報,同 1-182344 号公 報,同 1-279944 号公報,同 2-64140 号公報)。

例えば、SPS にゴム状弾性体としてスチレン系化合物を一成分として含有するもの(特開平 1-146944 号公報参照)、SPS-ゴム系に対し相溶化剤としてアタクチックポリスチレン鎖を含むブロックまたはグラフト共重合体を添加するもの(特開平 1-279944 号公報参照)、SPS-ゴム系に対しポリフェニレンエーテルを添加するもの(特開平 1-279944 号公報参照)などがある。

しかし、上記改良技術は、非相溶な SPS とゴム成分との相溶性を改良し、ゴム成分の分散性,界面強度の向上を目的とするため、ゴム成分あるいは相溶化剤としてアタクチックポリスチレン鎖を含むブロックまたはグラフト共重合体を用いているため相溶化剤の効果が不充分であり衝撃強度の向上度が低かった。

また、ポリフェニレンエーテルを多量に添加することにより耐衝撃性の改良を行う場合、得られる組成物の色相低下,長期耐熱性の低下,SPS の結晶化の低下等の問題を避けることができなかった。

#### [0003]

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記問題を解決すべく鋭意研究を重ねた。

その結果、少量のポリフェニレンエーテルを ゴム状弾性体と併用することにより上記問題 を解決できることを見出した。 [0002]

[Prior Art and Problems to be solved by the Invention]

Although syndiotactic styrene polymer (hereinafter, abbreviated to SPS) excels in heat resistance and chemical resistance, but its applications are restricted as raw material due to weak impact resistance.

Because of that, the impact resistance of SPS was improved after blending it with rubber elastomer, and other thermoplastic resins (Patent no. 62-257950, 01-146944, 01-182344, 01-279944, 02-64140).

For example, as rubber elastomer in SPS, the compound having styrene compound as one of the component (Patent no. 01-146944), compound having block or grafted copolymer containing compatibilizer atactic polystyrene chain in SPS-rubber (patent no. 01-279944), compound having polyphenylene ether in SPS-rubber (patent no. 01-279944), are listed.

However, since block or graft copolymer containing atactic polystyrene chain as a rubber component or a compatibilizer was used in order to improve the compatibility of incompatible SPS and rubber component and also to improve the dispersibility and interface intensity of a rubber component, the results of a compatibilizer were inadequate and the improvement in impact resistance was unsatisfactory.

In addition, when impact resistance was improved by adding large amount of polyphenylene ether, the problems, such as faded color of obtained composition, low impact resistance over a period of time, unsatisfactory crystallization of SPS, etc. could not be avoided.

[0003]

[Means to solve the problems]

Various attempts were made to solve the above mentioned problems.

As a result, the above mentioned problem was solved by adding small amount of polyphenylene ether with rubber elastomer.

すなわち、SPS にゴム状弾性体及び特定量のポリフェニレンエーテルをブレンドすることにより、成形性,耐熱性,弾性率を損なうことなく耐衝撃性,伸び性を大きく向上させたシンジオタクチックポリスチレン系樹脂組成物が得られることを見出した。

本発明は、かかる知見に基づいて完成したも のである。

# [0004]

すなわち、本発明は、(A)シンジオタクチック 構造を有するスチレン系重合体 95.0~99.9 重 量%と(B)ポリフェニレンエーテル 0.1~5.0 重 量%との混合物 100 重量部に対し、(C)ゴム状 弾性体 1~100 重量部を配合してなる耐衝撃性 ポリスチレン系樹脂組成物を提供するもので ある。

# [0005]

本発明の(A)成分であるシンジオタクチック 構造を有するスチレン系重合体は、本発明の 耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物の基材成 分として用いられる。

ここでシンジオタクチック構造を有するスチレン系重合体におけるシンジオタクチック構造とは、立体構造がシンジオタクチック構造、即ち炭素-炭素結合から形成される主鎖に対して側鎖であるフェニル基や置換フェニル基が交互に反対方向に位置する立体構造を有するものであり、そのタクティシティーは同位体炭素による核磁気共鳴法(<sup>13</sup>C-NMR法)により定量される。

<sup>13</sup>C-NMR 法により測定されるタクティシテ ィーは、連続する複数個の構成単位の存在割 合、例えば2個の場合はダイアッド,3個の場 合はトリアッド.5個の場合はペンタッドによ って示すことができるが、本発明に言うシン ジオタクチック構造を有するスチレン系重合 体とは、通常はラセミダイアッドで75%以上、 好ましくは85%以上、若しくはラセミペンタ ッドで30%以上、好ましくは50%以上のシン ジオタクティシティーを有するポリスチレ ン,ポリ(アルキルスチレン),ポリ(ハロゲン化 スチレン), ポリ(ハロゲン化アルキルスチレ ン), ポリ(アルコキシスチレン), ポリ(ビニル 安息香酸エステル),これらの水素化重合体 及びこれらの混合物、あるいはこれらを主成 分とする共重合体を指称する。

なお、ここでポリ(アルキルスチレン)としては、ポリ(メチルスチレン)、ポリ(エチルスチ

In other words, improved syndiotactic styrene resin composition with superior impact resistance and elongation property without affecting the moldability, heat resistance, and elasticity modulus was discovered by blending rubber elastomer and specific amount of polyphenylene ether with SPS.

The invention was completed on the basis of information.

# [0004]

In other words, the invention provides an impact resistant polystyrene resin composition blended with (C) 1 to 100 parts by weight rubber elastomer with respect to 100 parts by weight of mixture of (A) 95.0~99.9% by weight syndiotactic styrene polymer, (B) 0.1 to 5.0% by weight polyphenylene ether.

# [0005]

The component (A) syndiotactic styrene polymer is an impact resistant polystyrene resin composition, which is used as a base component.

The syndiotactic structure in syndiotactic styrene polymer is a three dimensional structure. In other words, compound possessing three-dimensional structure where phenyl group or substituted phenyl groups are placed on the opposite side alternately in the molecular chain formed by carbon-carbon bond. The tacticity can be determined by nuclear magnetic resonance method (<sup>13</sup>C-NMRmethod) by isotopic carbon.

Nuclear Magnetic Resonance method(<sup>13</sup>C - NMR method) determines the existing ratio of constitutional block of successive units, such as diode in case of 2 units, triode when 3 units and pentad for 5 units. In the invention, it is desirable to use syndiotactic styrene resin having syndiotacticity atleast 75%, preferably atleast 85% in case of racemic diode, and atleast 30%, preferably atleast 50% in case of racemic pentad. The examples of syndiotactic styrene polymer are polystyrene, poly(alkylstyrene), poly(halogenated styrene), poly(halogenated alkylstyrene), poly(vinyl benzoate ester), their hydrogenated products and mixtures, or copolymers of mainly these components.

Furthermore, poly(methylstyrene), poly(ethyl styrene), poly(isopropyl styrene), poly(tertiary butyl styrene),

レン), ポリ(イソプロピルスチレン), ポリ(ターシャリ-ブチルスチレン), ポリ(フェニルスチレン), ポリ(ビニルナフタレン), ポリ(ビニルスチレン)等があり、ポリ(ハロゲン化スチレン)としては、ポリ(クロロスチレン), ポリ(ブロモスチレン), ポリ(フルオロスチレン) 等がある。

また、ポリ(ハロゲン化アルキルスチレン)としては、ポリ(クロロメチルスチレン)等、また、ポリ(アルコキシスチレン)としては、ポリ(メトキシスチレン)、ポリ(エトキシスチレン)等がある。

これらのうち特に好ましいスチレン系重合体としては、ポリスチレン,ポリ(p-メチルスチレン),ポリ(m-メチルスチレン),ポリ(p-ターシャリーブチルスチレン),ポリ(p-クロロスチレン),ポリ(m-クロロスチレン),ポリ(p-フルオロスチレン),水素化ポリスチレン及びこれらの構造単位を含む共重合体が挙げられる。

なお、上記スチレン系重合体は、一種のみを 単独で、又は二種以上を組み合わせて用いる ことができる。

## [0006]

このスチレン系重合体は、分子量について特に制限はないが、重量平均分子量が好ましくは 10000 以上、更に好ましくは 50000 以上のものである。

さらに、分子量分布についてもその広狭は制 約がなく、様々なものを充当することが可能 である。

ここで、重量平均分子量が 10000 未満のものでは、得られる組成物あるいは成形品の熱的性質,力学的物性が低下する場合があり好ましくない。

このようなシンジオタクチック構造を有するスチレン系重合体は、例えば不活性炭化水素溶媒中、又は溶媒の不存在下に、チタン化合物及び水とトリアルキルアルミニウムの縮合生成物を触媒として、スチレン系単量体(上記スチレン系重合体に対応する単量体)を重合することにより製造することができる(特開昭 62-187708 号公報)。

また、ポリ(ハロゲン化アルキルスチレン)に ついては特開平 1-46912 号公報、上記水素化 重合体は特開平 1-178505 号公報記載の方法 等により得ることができる。 poly(phenylstyrene), poly(vinyl naphthalene), poly(vinyl styrene), etc. are used as poly(alkyl styrene), and poly(chlorostyrene), poly(bromostyrene), poly(fluorostyrene), etc. as poly(halogenated styrene).

In addition, poly(halogenated alkylstyrene) is poly(chloromethyl styrene), etc, and poly(alkoxy styrene) are poly(methoxy styrene), poly(ethoxy styrene), etc.

The preferred styrene compound are polystyrene, poly(p-methylstyrene), poly(m-methylstyrene), poly(p-tertiary butyl styrene), poly(p-chlorostyrene), poly(m-chlorostyrene), poly(p-fluorostyrene), hydrogenated polystyrene, and copolymers having these structural units.

Furthermore, these can be used independently or in combination.

[0006]

The weight average molecular weight of styrene polymer is atleast 10,000, preferably atleast 50,000.

Furthermore, there are no limitations regarding molecular weight distribution, it is possible to cover various things.

If weight average molecular weight is less than 10,000, the thermal and mechanical properties of the composition are affected, and hence not preferred.

Such kind of syndiotactic styrene polymer can be prepared by polymerizing styrene monomer in the presence of inert hydrocarbon solvent or in the absence of solvent, and using catalyst aluminoxane which is a condensation compound of titanium compound and water and trialkyl aluminum (patent no. 62-187708).

In addition, poly(halogenated alkyl styrene) can be obtained by the method mentioned in patent no. 01-146912, the above mentioned hydrogenated polymer by the method mentioned in patent no. 01-178505...

## [0007]

本発明の(B)成分であるポリフェニレンエ-テルは、公知の化合物であり、米国特許第3,306,874号,同3,306,875号,同3,257,357号及び同3,257,358号の各明細書を参照することができる。

ポリフェニレンエーテルは、通常、銅アミン 錯体、および二箇所もしくは三箇所を置換し た一種以上のフェノール化合物の存在下で、 ホモポリマー又はコポリマーを生成する酸化 カップリング反応によって調製される。

ここで、銅アミン錯体としては、第一,第二及び/又は第三アミンから誘導される銅アミン 錯体を使用できる。

適切なポリフェニレンエーテルの例として は、ポリ(2,3-ジメチル-6-エチル-1,4-フェニレ ンエーテル);ポリ(2-メチル-6-クロロメチル -1,4-フェニレンエーテル);ポリ(2-メチル-6-ヒ ドロキシエチル-1,4-フェニレンエーテル);ポ リ(2-メチル-6-n-ブチル-1,4-フェニレンエー テル);ポリ(2-エチル-6-イソプロピル-1,4-フェ ニレンエーテル):ポリ(2-エチル-6-n-プロピル -1,4-フェニレンエーテル);ポリ(2,3,6-トリメ **チル-1,4-フェニレンエーテル);ポリ〔2-(4'-**メチルフェニル)-1,4-フェニレンエーテル〕; ポリ(2-ブロモ-6-フェニル-1,4-フェニレンエ ーテル);ポリ(2-メチル-6-フェニル-1,4-フェニ レンエーテル);ポリ(2-フェニル-1,4-フェニレ ンエーテル);ポリ(2-クロロ-1,4-フェニレンエ ーテル);ポリ(2-メチル-1,4-フェニレンエーテ ル);ポリ(2-クロロ-6-エチル-1,4-フェニレンエ ーテル);ポリ(2-クロロ-6-ブロモ-1,4-フェニレ ンエーテル);ポリ(2,6-ジ-n-プロピル-1,4-フェ ニレンエーテル):ポリ(2-メチル-6-イソプロピ ル-1,4-フェニレンエーテル);ポリ(2-クロロ-6-メチル-1,4-フェニレンエーテル);ポリ(2-メチ ル-6-エチル-1,4-フェニレンエーテル);ポリ (2,6-ジブロモ-1,4-フェニレンエーテル);ポリ (2.6-ジクロロ-1.4-フェニレンエーテル):ポリ (2,6-ジエチル-1,4-フェニレンエーテル)及び ポリ(2.6-ジメチル-1.4-フェニレンエーテル) 等が挙げられる。

このなかでは、特にポリ(2,6-ジメチル-1,4-フ ェニレンエーテル)が好ましい。

なお、上記ポリフェニレンエ-テルは、一種の みを単独で、又は二種以上を組み合わせて用 いることができる。

例えば、前記ホモ歩の調整に使用されるようなフェノール化合物の二種又はそれ以上から

[0007]

The component (B) polyphenylene ether used in the invention is the well-known compound. It can be referred by US patent no. 3,306,874, 3,306,875, 3,257,357 and 3,257,358.

Polyphenylene ether is, generally, prepared by oxidative coupling reaction that forms homopolymer or copolymer in the presence of copper amine complex, and atleast one kind of phenol compound substituted at two or three places.

Here, copper amine complex is derived from primary, secondary or tertiary amine.

The suitable polyphenylene ether are poly(2,3 -dimethyl-6-ethyl-1,4- phenylene ether), poly(2 -methyl-6-chloromethyl-1, 4-phenylene ether), poly(2-methyl-6-hydroxyethyl-1,4- phenylene ether), poly(2-methyl-6-n-butyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-ethyl-6-isopropyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-ethyl-6-n- propyl-1, 4- phenylene ether), poly(2,3,6-trimethyl-1, 4- phenylene ether), poly{2 -(4'-methylphenyl)-1,4-phenylene ether}, poly(2-bromo-6-phenyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-methyl-6-phenyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-phenyl-1,4- phenylene ether), poly(2-chloro-1,4-phenylene ether), poly(2-methyl-1,4phenylene ether), poly(2-chloro-6-ethyl-1,4- phenylene ether), poly(2-chloro-6-bromo-1,4-phenylene ether), poly(2,6-di-npropyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-methyl-6-isopropyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-chloro-6-methyl-1, 4- phenylene ether), poly(2-methyl-6-ethyl-1,4-phenylene ether), poly(2,6-dibromo-1,4-phenylene ether), poly(2,6-dichloro-1,4-phenylene ether); poly(2,6-diethyl-1,4phenylene ether), and poly(2,6-dimethyl-1, 4-phenylene ether) etc.

Among these, poly(2,6-dimethyl-1, 4-phenylene ether) is preferred.

Furthermore, polyphenylene ether can be used independently or in combination.

For example, copolymers having two kinds of phenol compounds used for the adjustment of above-mentioned main

誘導される共重合体等の共重合体を用いることもできる。

さらに、例えばポリスチレン等のビニル芳香 族化合物と前述のポリフェニレンエーテルと のグラフト共重合体及びブロック共重合体を 用いることもできる。

## [0008]

(B)成分として用いるポリフェニレンエーテルの分子量については、特に制限はないが、好ましくは、クロロホルム中、25 deg C で測定した固有粘度が 0.2dl/g 以上のもの、さらに好ましくは 0.3dl/g 以上のものが用いられる。

固有粘度が 0.2dl/g 未満の場合、衝撃強度及び 伸び率の改善効果が小さく、好ましくない。

(B)成分であるポリフェニレンエーテルの配合割合は、(A)+(B)成分中の 0.1~5.0 重量%、さらに好ましくは 0.5~5.0 重量%とする。

この割合が 0.1 重量%未満では、耐衝撃性の 改善効果が少なく、5.0 重量%を超えると、成 形性の低下が著しく、好ましくない。

# [0009]

本発明の(C)成分であるゴム状弾性体は、本発明の樹脂組成物の耐衝撃性を改良するために 用いられる。

そのようなゴム状弾性体として種々のものを 用いることができるが、例えばスチレン-ブチ ルアクリレート共重合体ゴム,スチレン-ブタ ジエンブロック共重合体(SBR)、水素添加ス チレン-ブタジエンブロック共重合体(SEB), スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重 合体(SBS), 水素添加スチレン-ブタジエン-ス チレンブロック共重合体(SEBS)、スチレン-イソプレンブロック共重合体(SIR), 水素添加 スチレン-イソプレンブロック共重合体(SEP), スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重 合体(SIS)、水素添加スチレン-イソプレン-ス チレンブロック共重合体(SEPS)、スチレン-ブタジエンランダム共重合体、水素添加スチ レン-ブタジエンランダム共重合体、スチレン-エチレン-プロピレンランダム共重合体、スチ レン-エチレン-ブチレンランダム共重合体,あ るいはブタジエン-アクリロニトリル-スチレ ン-コアシェルゴム(ABS), メチルメタクリレ ート-ブタジエン-スチレン-コアシェルゴム (MBS), メチルメタクリレート-ブチルアクリ レート-スチレン-コアシェルゴム(MAS),オ step cam also be used.

Furthermore, graft copolymer and block copolymer of above mentioned polyphenylene ether and vinyl aromatic compound, e.g., polystyrene can also be used.

## [8000]

There is no restriction regarding the molecular weight of component (B). The substance having intrinsic viscosity at 25°C in chloroform atleast 0.2 dl/g, preferably atleast 0.3 dl/g, is used.

When intrinsic viscosity is less than 0.2 dl/g, the improvement results of impact strength and elongation are unsatisfactory, hence undesirable.

The amount of polyphenylene ether is 0.1 to 5.0% by weight, preferably 0.5 to 5.0% by weight in components (A) + (B).

If the ratio is less than 0.1% by weight, the improvement results of impact resistance are very less, when it exceeds 5.0% by weight, the moldability decreases considerably, and hence undesirable.

[0009]

The component (C) rubber type elastomer is used in order to improve the impact resistance of resin composition.

Various rubber type elastomers can be used, but for example styrene-butyl acrylate copolymer rubber, styrene-butadiene block copolymer (SBR), hydrogenated styrene-butadiene block copolymer (SEB), styrene-butadiene-styrene block copolymer (SBS), hydrogenated styrene-butadiene-styrene block copolymer (SEBS), styrene-isoprene block copolymer (SIR), hydrogenated styrene-isoprene block copolymer (SEP), styrene-isoprene-styrene block copolymer (SIS), hydrogenated styrene-isoprene-styrene block copolymer (SEPS), styrene-butadiene random copolymer, hydrogenated styrene-butadiene random copolymer, styrene-ethylene-propylene random copolymer, styrene-ethylene-butylene random copolymer, or particle type elastomer, e.g. butadiene-acrylonitrile-styrene-core shell rubber (ABS), methyl methacrylate-butadiene-styrene-core shell rubber (MBS), methyl methacrylate-butyl acrylate-styrene-core shell rubber (MAS), octyl acrylate-butadiene-styrene-core shell rubber (MABS), alkyl acrylate-butadiene-acrylonitrile-styrene-core shell rubber (AABS), butadiene-styrene--core shell rubber (SBR), etc., ethylene-polar vinyl monomer copolymer rubber, e.g., polysulfide rubber, thiokol rubber, acrylic rubber, urethane

クチルアクリレート-ブタジエン-スチレン-コ アシェルゴム(MABS)、アルキルアクリレー ト-ブタジエン-アクリロニトリル-スチレン-コアシェルゴム(AABS), ブタジエン-スチレ ン--コアシェルゴム(SBR)等のコアシェルタ イプの粒子状弾性体、ポリスルフィドゴム、 チオコールゴム,アクリルゴム,ウレタンゴム, エピクロロヒドリンゴム、塩素化ゴム、スチレ ン-ブチルアクリレート共重合体ゴム,エチレ ン-メチルメタクリレート-グリシジルメタク リレート共重合体ゴム、エチレン-メチルメタ クリレート-無水マレイン酸共重合体ゴム等 のエチレン-極性ビニルモノマー共重合体ゴ ム、天然ゴム,ポリブタジエン,ポリイソプレ ン,ポリイソブチレン,ネオプレン,シリコーン ゴム,エチレンプロピレンゴム(EPR), エチレ ンプロピレンジエンゴム(EPDM)などが挙げ られる。

こ の 中 で 特 に 、 SBR,SEB,SBS,SEBS,SIR,SEP,SIS,SEPS,スチレ ンを含有するコアシェルゴムが好ましい。

なお、上記ゴム状弾性体は、一種のみを単独 で、又は二種以上を組み合わせて用いること ができる。

(C)成分として用いるゴム状弾性体の配合割合は、(A)成分と(B)成分との混合物 100 重量部に対して 1~100 重量部、好ましくは 5~80 重量部とする。

この割合が1重量部未満であると耐衝撃性の 改善効果が少なく、100 重量部を超えると組 成物の弾性率,耐熱性の低下が著しく、好まし くない。

## [0010]

上記ゴム状弾性体とともに、極性基を有する ゴム状弾性体を併用することも耐衝撃性の向 上にとって好ましい。

使用しうる極性基を有するゴム状弾性体の具体例としては、ポリスルフィドゴム,チオオクロルゴム,アクリルゴム,ウレタンゴム,エピテクリレート-グリシジルメタクリレート-グリシジルメタクリレート-グリシジルメタクリレート 共重合体ゴム等の大手を有するゴム,天然ゴム,ポリブタジエントーとを有するゴム,スチレン・ブタジエンリン共重合体ゴム(SBR),スチレン・ブタジエン・ク共重合体ゴム(SBR),スチレン・ブタジエ

rubber, epichlorohydrin rubber, chlorinated rubber, styrene-butyl acrylate copolymer rubber, ethylene-methyl methacrylate-glycidyl methacrylate copolymer rubber, ethylene-methyl methacrylate-maleic anhydride copolymer rubber, etc., natural rubber, polybutadiene, polyisoprene, polyisobutylene, neoprene, silicone rubber, ethylene propylene rubber (EPR), ethylene propylene diene rubber (EPDM) etc.

Among these, specifically core shell rubber that contains SBR, SEB, SBS, SEBS, SIR, SEP, SIS, SEPS, styrene are preferred.

Furthermore, above-mentioned elastomer can be used independently or in combination.

The amount of component (C) rubber type elastomer is 1 to 100 parts by weight, preferably 5 to 80 parts by weight with respect to 100 parts by weight of mixture (A) and (B).

When the ratio is less than 1 part by weight, the improvement results of impact resistance are very less, when it exceeds 100 parts by weight, the moldability and heat resistance decreases considerably, and hence undesirable.

[0010]

It is desirable to use above-mentioned elastomer along with elastomer having polar group for improving impact resistance.

The examples of rubber type elastomer having polar group are ethylene-polar vinyl monomer copolymer rubber, e.g., polysulfide rubber, thiokol rubber, acrylic rubber, urethane rubber, epichlorohydrin rubber, chlorinated rubber, styrene-butyl acrylate copolymer rubber, ethylene-methyl methacrylate-glycidyl methacrylate copolymer rubber, ethylene-methyl methacrylate-maleic anhydride copolymer, etc.; modified rubber modified by modifier having polar group, e.g., natural rubber, polybutadiene, polyisoprene, polyisobutylene, neoprene, silicone rubber, styrene-butadiene block copolymer (SBR), styrene-butadiene-styrene block copolymer (SBS), styrene-isoprene block copolymer

ン-スチレンブロック共重合体(SBS), 水素添加スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共 重合体(SEBS), スチレン-イソプレンブロック共重合体(SIR), スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体(SIS), 水素添加スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体(SEPS), エチレンプロピレンゴム(EPR), エチレンプロピレンジエンゴム(EPDM), エチレンブチレンゴム(EBM)等を極性基を有する変性剤により変性したゴム等が挙げられる。

こ の 中 で 好 適 な も の は SEBS,SBR,SBS,SEPS,SIS を変性したゴム状弾 性体である。

なお、上記極性基を有するゴム状弾性体は、 一種のみを単独で、又は二種以上を組み合わ せて用いることができる。

ここで、極性基は特に限定されるものではなく、例えば、酸ハライド,カルボニル基,酸無水物,酸アミド,カルボン酸エステル,酸アジド,スルフォン基,ニトリル基,シアノ基,イソシアン酸エステル基,アミノ基,水酸基,イミド基,チオール基,オキサゾリン基,エポキシ基等が挙げられる。

特に好ましい極性基は酸無水物基又はエポキシ基であり、その中でも無水マレイン酸およびグリシジルメタクリレートが好ましい。

この極性基の含量は、(C)成分である極性基を 有するゴム状弾性体に対して好ましくは 0.1 重量%以上であれば良く、0.1 重量%未満では 機械的強度の向上を望めない場合がある。

本発明の(C)成分としては、特に無水マレイン酸変性 SEBS,無水マレイン酸変性 EPR,エポキシ変性 SEBS などが好適に用いられる。

## [0011]

本発明の耐衝撃性ポリスチレン系樹脂組成物 (以下、本組成物と略す場合がある。)は上記 (A)~(C)成分からなるものであるが、その他、 本発明の目的を阻害しない限り、無機充塡材, 核剤,酸化防止剤,紫外線吸収剤,可塑剤,離型 剤,帯電防止剤,着色剤,難燃剤,難燃助剤等の添 加剤あるいはその他の熱可塑性樹脂を必要に 応じて配合することができる。

ここで例えば無機充塡材としては、繊維状、 粒状、粉状等、様々なものが挙げられる。

繊維状充塡材としては、ガラス繊維,炭素繊維, ウィスカー,ケブラー繊維,セラミック繊維,金 属繊維等が挙げられる。 (SIR), styrene-isoprene-styrene block copolymer (SIS), hydrogenated styrene-isoprene-styrene block copolymer (SEPS), ethylene propylene rubber (EPR), ethylene propylene diene rubber (EPDM), ethylene butylene rubber (EBM) etc.

Among these, the preferred substances are rubber type elastomer where SEBS, SBR, SBS, SEPS,SIS are modified.

Furthermore, the above mentioned rubber type elastomer having polar group can be used independently or in combination.

Here, there are no limitation for polar groups, e.g., acid halide, carbonyl group, acid anhydride, acid amide, carboxylate ester, acid azide, sulfone group, nitrile group, cyano group, isocyanate ester group, amine group, hydroxy group, imide group, thiol group, oxazoline group, epoxy group etc.

The preferred polar group is acid anhydride group or epoxy group, and among those, maleic anhydride and glycidyl methacrylate are preferred.

The polar group content is atleast 0.1% by weight with respect to rubber type elastomer having polar group. If it is less than 0.1% by weight, the mechanical strength cannot be improved.

As (C) component, specifically maleic anhydride-modified SEBS, maleic anhydride-modified EPR, epoxy modified SEBS, etc. are ideal to use.

[0011]

The impact-resistant polystyrene resin composition is comprised of above mentioned components (A) to (C), but it can be blended with our additive agents, e.g., inorganic filler, nucleating agent, antioxidant, ultraviolet absorbent, plasticizer, mold release, antistatic agent, colorant, flame retardant, flame retardant auxiliary agent, etc. in the range that does not affect the objective of the invention.

As inorganic filler, fibrous, particle, powdered substance can be used.

As fibrous filler, glass fiber, carbon fiber, whisker, kevlar fiber, ceramic fiber, metal fiber etc. are mentioned.

具体的に、ウィスカーとしてはホウ素,アルミナ,シリカ,炭化ケイ素等、セラミック繊維としてはセッコウ,チタン酸カリウム,硫酸マグネシウム,酸化マグネシウム等、金属繊維としては銅,アルミニウム,鋼等がある。

ここで、充塡材の形状としてはクロス状,マット状,集束切断状,短繊維,フィラメント状のもの,ウィスカーがある。

また、集束切断状の場合、長さが 0.05~50mm, 繊維径が 5~20µ m のものが好ましい。

また、クロス状,マット状の場合、長さが好ま しくは 1mm 以上、特に 5mm 以上が好ましい。

一方、粒状,粉状充塡材としては、例えばタルク,カーボンブラック,グラファイト,二酸化チタン,シリカ,マイカ,炭酸カルシウム,硫酸カルシウム,炭酸バリウム,炭酸マグネシウム,硫酸マグネシウム,硫酸バリウム,オキシサルフェート,酸化スズ,アルミナ,カオリン,炭化ケイ素,金属粉末,ガラスパウダー,ガラスフレーク,ガラスビーズ等が挙げられる。

これら充塡材のうち特にガラス充塡材、例えばガラスフィラメント,ガラスファイバー,ガラスロビング,ガラスマット,ガラスパウダー,ガラスフレーク,ガラスビーズが好ましい。

## [0012]

また、上記無機充塡材は表面処理したものが 好ましい。

この表面処理に用いられるカップリング剤は、充塡材と樹脂成分との接着性を良好にするために用いられるが、所謂シラン系カップリング剤,チタン系カップリング剤として公知のもののなかから適宜選定して用いることができる。

このシラン系カップリング剤の具体例として は、トリエトキシシラン,ビニルトリス(β-メ トキシエトキシ)シラン,γ-メタクリロキシプ ロピルトリメトキシシラン、v -グリシドキシ プロピルトリメトキシシラン、B-(1,1-エポキ シシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラ ン,Ν-β -(アミノエチル)-γ -アミノプロピルト リメトキシシラン,N-β -(アミノエチル)-y -ア ミノプロピルメチルジメトキシシラン,γ-ア ミノプロピルトリエトキシシラン.N-フェニ ル-γ -アミノプロピルトリメトキシシラン,γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン,γ -クロロプロピルトリメトキシシラン,γ -アミ ノプロピルトリメトキシシラン,γ -アミノプ ロピル-トリス(2-メトキシ-エトキシ)シラ ンメエノエニュ アミノプロレリトロット生シ

Precisely, boron, alumina, silica, silicon carbide, etc. are used as whisker, gypsum, potassium titanate, magnesium sulfate, magnesium oxide as ceramic fiber, and copper, aluminum, steel etc., as metal fiber.

The shape of the filler can be cross type, mat type, converging cut shape, short fiber, filament type, and whisker.

In case of converging cut shape, the preferred length is 0.05 - 50 mm, fiber diameter is  $5 - 20\mu$  m.

In addition, in case of cross, mat type shapes, the preferred length is at least 1 mm, preferably at least 5 mm.

On the other hand, the examples of particle and powdered filler are talc, carbon black, graphite, titanium dioxide, silica, mica, calcium carbonate, calcium sulfate, barium carbonate, magnesium carbonate, magnesium sulfate, barium sulfate, oxysulfate, tin oxide, alumina, porcelain clay, silicon carbide, metal powder, glass powder, glass flake, glass beads etc.

Amongst the all, glass filler, e.g., glass filament, glass fiber, glass robbing, glass mat of these filler, glass powder, glass flake, glass beads are preferred.

## [0012]

In addition, it is preferred to carry out surface treatment on the above-mentioned inorganic filler.

The coupling agent used for the surface treatment is used in order to hold filler and resin component strongly. The well-known silane-coupling agent, titanium-coupling agent are ideal to use.

The examples of silane coupling agent are triethoxysilane, vinyl tris(β -methoxy ethoxy) silane,γ -methacryloxy propyl trimethoxysilane,γ -glycidoxy propyl trimethoxysilane,β -(1,1 -epoxy cyclohexyl) ethyl trimethoxysilane, N-β -(aminoethyl)-γ -aminopropyl trimethoxysilane,γ -aminopropyl triethoxysilane, N- phenyl-γ -aminopropyl trimethoxysilane,γ -mercapto propyl trimethoxysilane,γ -chloropropyl trimethoxysilane,γ -aminopropyl trimethoxysilane,γ -aminopropyl trimethoxysilane,γ -aminopropyl trimethoxysilane, N- methyl-γ -aminopropyl trimethoxysilane, N- vinyl benzyl-γ -aminopropyl triethoxysilane, triaminopropyl trimethoxysilane, 3- ureidopropyl trimethoxysilane, 3-(4,5 -dihydro imidazole) propyl triethoxysilane, hexamethyl disilazane, N,O- (bis trimethylsilyl) amide, N, N- bis (trimethylsilyl) urea etc.

ン,N-メチル-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン,N-ビニルベンジル-γ-アミノプロピルトリエトキシシラン,トリアミノプロピルトリメトキシシラン,3-ウレイドプロピルトリメトキシシラン,3-(4,5-ジヒドロイミダゾール)プロピルトリエトキシシラン,ヘキサメチルジシラザン,N,O-(ビストリメチルシリル)アミド,N,N-ビス(トリメチルシリル)ウレア等が挙げられる。

これらの中で好ましいのは、 $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン,N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン, $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン, $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン等のアミノシラン,エポキシシランである。

# [0013]

また、チタン系カップリング剤の具体例とし ては、イソプロピルトリイソステアロイルチ タネート,イソプロピルトリドデシルベンゼ ンスルホニルチタネート,イソプロピルトリ ス(ジオクチルパイロホスフェート)チタネー ト、テトライソプロピルビス(ジオクチルホス ファイト)チタネート,テトラオクチルビス(ジ トリデシルホスファイト)チタネート,テトラ (1,1-ジアリルオキシメチル-1-ブチル)ピス(ジ トリデシル)ホスファイトチタネート,ビス(ジ オクチルパイロホスフェート)オキシアセテ ートチタネート,ビス(ジオクチルパイロホス フェート)エチレンチタネート,イソプロピル トリオクタノイルチタネート,イソプロピル ジメタクリルイソステアロイルチタネート, イソプロピルイソステアロイルジアクリルチ タネート,イソプロピルトリ(ジオクチルホス フェート)チタネート,イソプロピルトリクミ ルフェニルチタネート,イソプロピルトリア ミノエチルチタネート,ジクミルフェニルオ キシアセテートチタネート,ジイソステアロ イルエチレンチタネートなどが挙げられる。

これらの中で好ましいのは、イソプロピルト リアミノエチルチタネートである。

# [0014]

このようなカップリング剤を用いて前記充塡 材の表面処理を行うには、通常の公知である 方法で行うことができ、特に制限はない。

例えば、上記カップリング剤の有機溶媒溶液 あるいは懸濁液をいわゆるサイジング剤とし て充塡材に塗布するサイジング処理,あるい はヘンシェルミキサー,スーパーミキサー,レ Amongst these, the preferred ones are aminosilane and epoxy silane, e.g.,  $\gamma$  -aminopropyl trimethoxysilane, N- $\beta$  - (aminoethyl) - $\gamma$  -aminopropyl trimethoxysilane,  $\gamma$  -glycidoxy propyl trimethoxysilane,  $\beta$  -(3,4 -epoxy cyclohexyl) ethyl trimethoxysilane, etc.

## [0013]

In addition, the examples titanium coupling agent are isopropyl triisostearoyl titanate, isopropyl tridodecyl benzene sulfonyl titanate, isopropyl tris (dioctyl pyrophosphate) titanate, tetraisopropyl bis (dioctyl phosphite) titanate, tetraoctyl bis (di tridecyl phosphite) titanate, tetra (1,1 -diallyl oxymethyl -1-butyl) bis (ditridecyl) phosphite titanate, bis (dioctyl pyrophosphate) oxy acetate titanate, bis (dioctyl pyrophosphate) ethylene titanate, isopropyl trioctanoyl titanate, isopropyl dimethacrylic isostearoyl titanate, isopropyl tri (dioctyl phosphate) titanate, isopropyl tricumyl phenyl titanate, isopropyl triamino ethyl titanate, dicumyl phenyl oxy acetate titanate, diisostearoyl ethylene titanate etc.

Isopropyl triaminoethyl titanate is preferred amongst the all.

# [0014]

The well known method can be adopted as surface treatment of above mentioned fillers using coupling agent.

For example, sizing treatment where organic solvent or suspension of coupling agent is applied on the filler as sizing agent, or dry mixing using henschel mixer, supermixer, loedige mixer, V type blender, etc., spray method, integral

ーディゲミキサー,V型ブレンダーなどを用いての乾燥混合、スプレー法,インテグラルブレンド法,ドライコンセントレート法など、充塡材の形状により適宜な方法にて行うことができるが、サイジング処理,乾式混合,スプレー法により行うことが望ましい。

また、上記のカップリング剤とともにガラス 用フィルム形成性物質を併用することができ る。

このフィルム形成性物質には、特に制限はなく、例えばポリエステル系,ウレタン系,エポキシ系,アクリル系,酢酸ビニル系,ポリエーテル系等の重合体が挙げられる。

# [0015]

無機充塡材を配合する場合、前記(A)+(B)+(C) 成分 100 重量部に対して 1~350 重量部、好ま しくは 5~200 重量部配合する。

表面処理充塡材の配合量が1 重量部未満であると、充塡材としての充分な配合効果が発現せず、350 重量部を超えると、分散性が悪く、成形が困難になるという不都合が生じる。

また、無機充塡材と樹脂との接着性を向上させるために、無水マレイン酸変性 PPO,無水マレイン酸変性 SPS などを 0.1~5.0 重量部の範囲で添加することもできる。

#### [0016]

また、核剤としては、有機酸の金属塩及び有 機リン化合物が挙げられる。

これらのうち好ましいものは、ジ-p-tert-ブチル安息香酸のアルミニウム塩,p-(tert-ブチル) 安息香酸のアルミニウム塩,シクロヘキサンカルボン酸のナトリウム塩,β-ナフトエ酸のナトリウム塩である。

有機リン化合物のうち好適なものは、メチレンピス(2,4-ジ-t-ブチルフェノール)アシッドホスフェートナトリウムである。

なお核剤は、一種のみを単独で、又は二種以 上を組み合わせて用いることができる。

#### [0017]

酸化防止剤としては、(2,6-ジ-t-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト(アデカ・アーガス社製,PEP-36)、テトラキス(メチレン-3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル))プロピオネート(アデカ・アーガス社製,MARK A060)等を用いるこ

blend method, dry concentrate method, etc. These can be selected on the basis of the shape of the filler. But sizing treatment, dry mixing, and spray method are preferred.

In addition, with above-mentioned coupling agent glass film forming substance can also be used.

There are no restrictions regarding film forming substance, e.g., polymers of polyester, urethane, epoxy, acrylic, vinyl acetate, polyether, etc. can be used.

# [0015]

An inorganic filler should be blended in the proportion 1 to 350 parts by weight, preferably 5 to 200 parts by weight with respect to 100 parts by weight of components (A) + (B) + (C).

When blend amount of surface treatment filler is less than 1 part by weight, satisfactory blending results are not demonstrated. If it exceeds 350 parts by weight, dispersibility becomes bad, and molding is difficult to perform.

In addition, in order to improve adhesiveness of inorganic filler and resin, maleic anhydride-modified PPO, maleic anhydride-modified SPS etc., can be added in the range of 0.1 - 5.0 parts by weight.

# [0016]

Furthermore, metallic salt and organophosphorus compound of organic acid can be used as nucleating agent.

Aluminum salt of di-p-tert-butyl benzoic acid, p-(tert) benzoic acid, sodium slats of cyclohexane carboxylic acid, $\beta$  -naphthoic acid are preferred.

Sodium methylene bis (2,4 -di-t-butyl phenol) acid phosphate is preferred among organophosphorus compound.

Furthermore, nucleating agent can be used independently or in combination.

# [0017]

As antioxidant, (2,6-di-t-butyl-4- methylphenyl) pentaerythritol diphosphite (Adeka Argus Co. make, PEP-36), tetrakis (methylene-3-(3',5'-di-t-butyl-4'-hydroxyphenyl)) propionate (Adeka Argus Co. make, Mark A060) etc. can be used.

とができる。

なお酸化防止剤は、一種のみを単独で、又は 二種以上を組み合わせて用いることができ る。

可塑剤としては、ポリエチレングリコール, エチレンピスアミド,低分子量ポリアミド(共 栄社化学(株)製,ライトアマイド)等を用いる ことができる。

## [0018]

本発明の組成物は、上述した(A), (B)及び(C) 成分を所定の割合で配合し、さらに必要に応じてその他の添加剤あるいは他の熱可塑性樹脂を配合し、ブレンドすることによって調製する。

このブレンド方法としては、従来から知られている溶融混練法、溶液ブレンド法等を適宜 採用することができる。

またップリング剤で処理された無機充塡材の配合方法としては、その他に、(A)成分又はその組成物からなるシートとガラスマットを積層して溶融する方法,(A)成分又はその組成物、及び長繊維状無機充塡材を液体中でスラリー状に混合させ、沈積後加熱する方法等を採用することができる。

一般的にはバンバリーミキサー,ヘンシェルミキサーや混練ロールによる通常の溶融混練によることが好ましい。

# [0019]

# 【実施例】

次に、本発明を製造例,実施例及び比較例により更に詳しく説明する。

## [0020]

## 実施例1

SPS(重量平均分子量 360,000、重量平均分子量/数平均分子量 2.40)780g、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)(固有粘度 0.45dl/g、クロロホルム中、25 deg C)20g、ゴム状弾性体として SEBS(Shell Chem. Co. Kraton G-1651)200g、酸化防止剤として(2,6-ジ-t-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト(アデカ・アーガス社製,PEP-36)1g、テトラキス(メチレン-3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル))プロピオネート(アデカ・アーガス社製,MARK AO60)1g を加えヘンシェルミキサーでドライ

Furthermore, antioxidant can be used independently or in combination.

As plasticizer, polyethylene glycol, ethylene bisamide, low molecular weight polyamide (Kyoei Chemical Co. Ltd., Lite Amide) etc. can be used.

## [0018]

The resin composition is manufactured by blending the above mentioned components (A), (B), and (C) in predetermined ratio, and if required, blending with other additive agents or thermoplastic resin.

The conventional blending method, e.g., melting and kneading method, solution blending method etc. can be adopted.

In addition, as the blending method of surface treated inorganic filler, the method of laminating sheet comprised of component (a) or its composition and glass mat, the method of mixing component (A) or its composition, and long fibrous inorganic filler, depositing and heating, can be used.

Generally, fusion and kneading method with the help of banbury mixer, henschel mixer or kneading roll is preferred.

# [0019]

# [Embodiment(s)]

Hereinafter, the invention is explained with the help of embodiments and comparative examples.

## [0020]

#### Embodiment 1

780 g SPS (weight average molecular weight 360,000, weight average molecular weight/number-average molecular weight 2.40), 20g poly (2,6-dimethyl-1, 4- phenylene ether) (intrinsic viscosity 0.45 dl/g in chloroform at 25°C), 200g elastomer SEBS (Shell Chem. Co. Kraton G-1651), 1g (2,6-di-t-butyl-4-methylphenyl) pentaerythritol diphosphite (Adeka Argus Co. make, PEP-36), 1g tetrakis

(methylene-3-(3',5'-di-t-butyl-4'-hydroxyphenyl)) propionate (Adeka Argus Co. make, Mark AO60) as antioxidants was mixed, dry blended with the help of henschel mixer, and was pelletized by biaxial extruder.

ブレンドを行った後、2 軸押出機にてペレット化した。

得られたペレットを用い、射出成形を行なって引張試験片及びアイゾット試験片を得た。

得られた試験片を用いてアイゾット衝撃強度 及び伸び率を測定し、得られた結果を第1表 に示す。

# [0021]

## 実施例2

シンジオタクチックポリスチレンを 760g、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)を40g 用いた以外は、実施例 1 と同様にして操作を行い、結果を第1表に示す。

## [0022]

# 実施例3

ゴム状弾性体として、SEBS(Shell Chem. Co. Kraton G-1651)160g と無水マレイン酸変性 SEBS(旭化成株式会社製、M-1913)40g を併用した以外は、実施例 2 と同様にして操作を行い、結果を第 1 表に示す。

#### [0023]

## 実施例4

ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)(固有粘度 0.20 dl/g、クロロホルム中、25 deg C)を用いた以外は、実施例 1 と同様にして操作を行い、結果を第 1 表に示す。

## [0024]

## 実施例 5

核剤として、メチレンビス(2,4-ジ-t-ブチルフェノール)アシッドホスフェートナトリウム(アデカ・アーガス社製 NA-11)を 10g 添加した以外は、実施例 1 と同様にして操作を行い、結果を第 1 表に示す。

# [0025]

## 比較例 1

シンジオタクチックポリスチレンを 800g 用い、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)を用いなかった以外は、実施例 1 と同様にして操作を行い、結果を第 1 表に示す。

# [0026]

Tensile test piece and Izode piece was obtained by carrying out injection molding using pellets.

Izode impact strength and elongation were measured using test piece, and results are shown in table 1.

# [0021]

#### **Embodiment 2**

It was operated same as embodiment 1, except using 760g syndiotactic polystyrene, and 40 g poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylene ether). The results are shown in table 1.

## [0022]

#### **Embodiment 3**

It was operated same as embodiment 2, except using 160g SEBS (Shell Chem. Co. Kraton G-1651), and 40g maleic anhydride-modified SEBS (Asahi Chemical Co. Ltd., M-1913) together as elastomer. The results are shown in table 1.

## [0023]

## **Embodiment 4**

It was operated same as embodiment 1, except using poly(2,6-dimethyl-1, 4-phenylene ether) (intrinsic viscosity 0.20 dl/g in chloroform at 25°C). The results are shown in table 1.

## [0024]

## **Embodiment 5**

It was operated same as embodiment 1 after adding 10 g sodium methylenebis(2,4-di-t-butyl phenol) acid phosphate (Adeka Argus Co, NA-11). The results are shown in table 1.

## [0025]

## Comparative Example 1

It was operated same as embodiment 1, except using 800 g syndiotactic polystyrene, and not using poly(2,6-dimethyl-1, 4- phenylene ether). The results are shown in table 1.

## [0026]

# 比較例 2

シンジオタクチックポリスチレンを 700g、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンエーテル)を 100g 用いた以外は、実施例 1 と同様にして操作を行い、結果を第 1 表に示す。

# [0027]

# 比較例3

核剤として、メチレンビス(2,4-ジ-1-ブチルフェノール)アシッドホスフェートナトリウム(アデカ・アーガス社製 NA-11)を 10g 添加した以外は、比較例 1 と同様にして操作を行い、結果を第 1 表に示す。

## [00328]

# 【表 1】

# Comparative Example 2

It was operated same as embodiment 1, except using 700g syndiotactic polystyrene, and 100g poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylene ether). The results are shown in table 1.

# [0027]

# Comparative Example 3

It was operated same as comparative example 1 except adding 10g sodium methylene bis(2,4-di-t-butyl phenol) acid phosphate (Adeka Argus Co. make, NA-11) as nucleating agent. The results are shown in table 1.

# [0028]

## [Table 1]

	Component (A)	Compone nt (B)	Component (C	E)	Nucleating agent	Izode impact strength (notched)	Elongation *2	Moldabi lity *3
	SPS (g)	PPE (g)	Туре	(g)	NA-11 (g)	(kJ/m²)	%	
Embodiment 1	780	20*4	G-1651	200	-	13.7	19.8	0
Embodiment 2	760	40*4	G-1651	200	-	24.8	23.0	0
Embodiment 3	760	40*4	G-1651	160	-	32.0	26.1	0
			M-1913	40				
Embodiment 4	780	20*5	G-1651	200	-	8.0	18.0	0
Embodiment 5	780	20*4	G-1651	200	10	7.8	17.7	0
Comparative example 1	800	-	G-1651	200	-	6.0	10.0	0
Comparative example 2	700	100*4	G-1651	200	-	27.1	24.2	Х
Comparative example 3 1	800	-	G-1651	200	10	4.9	8.8	0

[0029]

\*1:JIS K 7110(ノッチ付き)に準拠

\*1:JIS K 7 110 (notched)

* 2 : J   S	K	7 1 1 3 に準拠

* 2:JIS		K	In conformity with JIS K7113
* 3	:成形性	良	◎ > ○ > ×
* 3	:moldability	Good	◎ > 0 >X

deg C)

\*5:固有粘度 0.20dl/g(クロロホルム中、25 deg C)

# [0030]

第1表から明らかなとおり、(B)成分を用いる ことにより(A)+(C)成分の場合と比較して衝 撃強度及び伸び性を著しく向上させることが 可能となる。

また、(B)成分を(A)+(B)成分中の 5 重量%以下 の範囲で用いることにより成形性と、衝撃強 度及び伸び性とを両立した樹脂組成物を得る ことができる。

# [0031]

## 【発明の効果】

以上の如く、本発明の耐衝撃性ポリスチレン 系樹脂組成物は、高い耐熱性,弾性率及び成形 性を有するとともに、耐衝撃性及び伸び性に 優れており、成形法に捕らわれることなく優 れた物性を有する成形品を提供することがで きる。

すなわち、本発明の耐衝撃性ポリスチレン系 樹脂組成物は、例えば、射出成形による各種 成形品、押出成形によるシート,フィルム等、 押出成形及び熱成形による容器,トレイ等、押 出成形及び延伸による一軸,二軸延伸フィル ム,シート等、紡糸による繊維状成形品などの 製造に有効な利用が期待される。 deg C)

\* 5:intrinsic visosity 0.20 dl/g (in chloroform, 25°C)

# [0030]

This is understood from table 1 that by adding component (B), the impact strength and elongation have improved considerably as compared to components (A) + (C).

In addition, the resin composition excelling in moldability, impact strength, and elongation can be obtained if component (B) is less than 5% by weight in components (A) + (C).

[0031]

## [Result of the Invention]

The impact-resistant polystyrene resin composition of the invention with high heat resistance, elasticity modulus, moldability, impact resistance, and elongation can offer molded articles with outstanding physical properties.

In other words, impact-resistant polystyrene resin composition can be used for the manufacturing of molded articles by injection molding, sheet, film, etc. by extrusion molding, container, tray, etc. by extrusion molding and thermal molding, monoaxial, biaxially drawn film, sheet, etc. by extrusion molding and elongation.